

Ядерный топливный цикл и обращение с радиоактивными отходами

Литература (в наличии на химфаке):

1. Скачек М.А. Обращение с отработавшим ядерным топливом и радиоактивными отходами АЭС: учебное пособие для вузов. – М.: Издательский дом МЭИ, 2007. – 488 с. (кхн-1, счз-1, абу-9, хф-5)
Громов Б.В., Савельева В.И., Шевченко В.Б. Химическая технология облученного ядерного топлива: учебник для вузов М.: Энергоатомиздат, 1983. – 352 с.(кхн-1, счз-1, абу-9, хф-5)
2. Химия элементов: в 2 т. Т. 2 / пер. с англ. Л. Ю. Аликберовой [и др.] / Н. Гринвуд, А. Эрншо. - Москва : Бином. Лаборатория знаний, 2008. - 671 с. (кхн-1, рф-1, хф-2)
3. Неорганическая химия: в 3 т.: учебник для студ. вузов, обуч. по направлению 510500 "Химия" и спец. 011000 "Химия". Т. 3 : Химия переходных элементов, кн. 2 / [А. А. Дроздов и др.] ; под ред. Ю. Д. Третьякова . - Москва : Академия, 2007. - 400 с. (кхн-1, рф-10, хф-16)

<http://www.library.bsu.by>

Поиск в разделе «электронный каталог и БД собственной генерации»→«книги»

Лекция №1

Вводная лекция по курсу.

Атомная энергия и ядерные реакторы

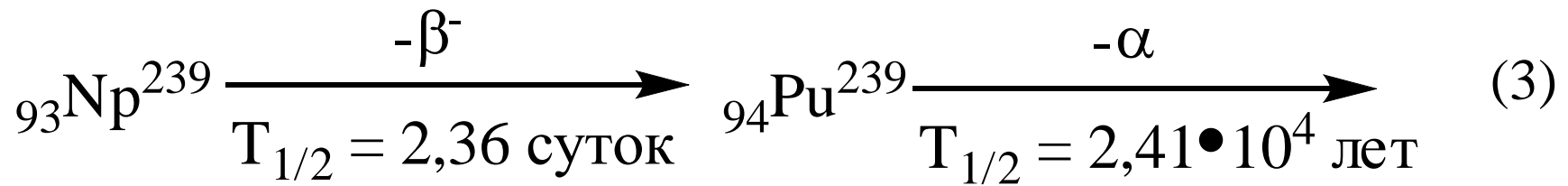
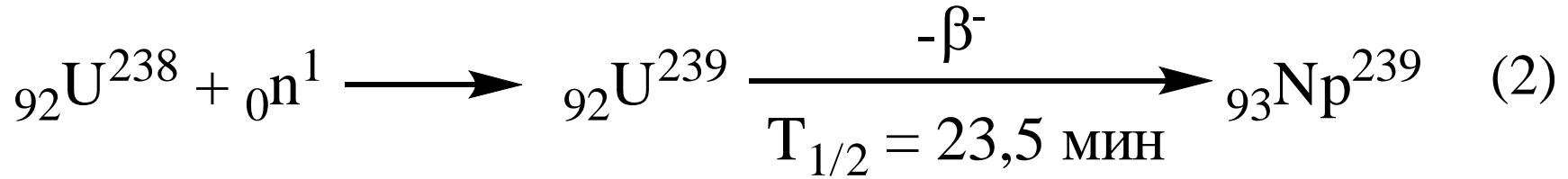
В процессе деления ядер тяжелых атомов образуются два обладающих большой кинетической энергией меньших ядра (осколка) и некоторое количество нейтронов:



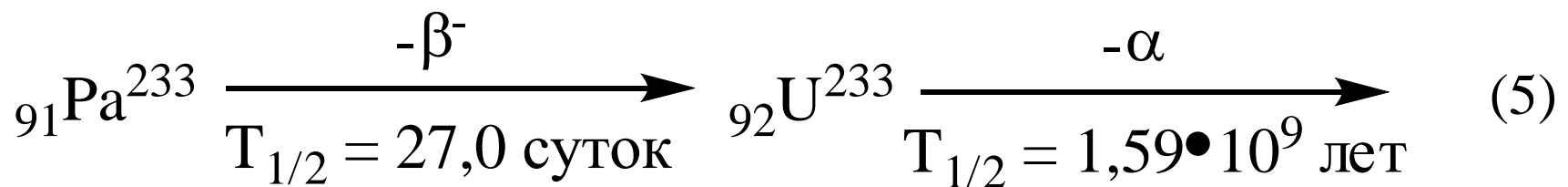
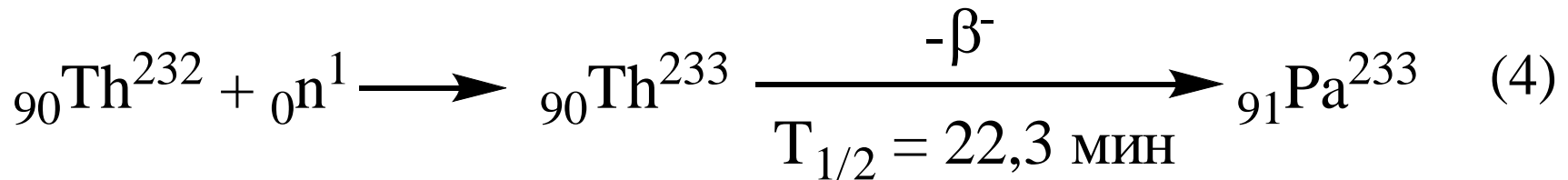
Таким образом, нуклиды, делящиеся при взаимодействии с нейтронами, могут использоваться в качестве ядерного топлива.

Делящимися нуклидами являются:

- 1) Естественные изотопы урана и тория;
- 2) Искусственные изотопы плутония (продукты последовательного захвата нейтронов изотопами, начиная с U^{238}):



- 3) Изотопы трансурановых элементов (Np, Am, Cm, Bk, Cf);
- 4) Искусственный изотоп U^{233} (продукт захвата нейтронов Th^{232}):



Деление нуклидов с четным массовым числом (^{238}U , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{232}Th) происходит преимущественно под действием нейтронов с высокой энергией ($>1,5$ МэВ).

Изотопы урана и плутония с нечетными массовыми числами (^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu) делятся как быстрыми так и тепловыми нейтронами, причем чем ниже энергия нейтронов тем выше сечение деления нечетных изотопов.

Спектр нейтронов, испускаемых в процессе деления – это спектр быстрых нейтронов ($E \sim 2,1$ МэВ). Они быстро замедляются ниже порога реакции деления четных изотопов. Поэтому цепную реакцию деления четных изотопов трудно осуществить, а для поддержания цепной реакции на нечетных изотопах необходимо замедлить нейтроны до тепловой энергии.

Ядерное топливо

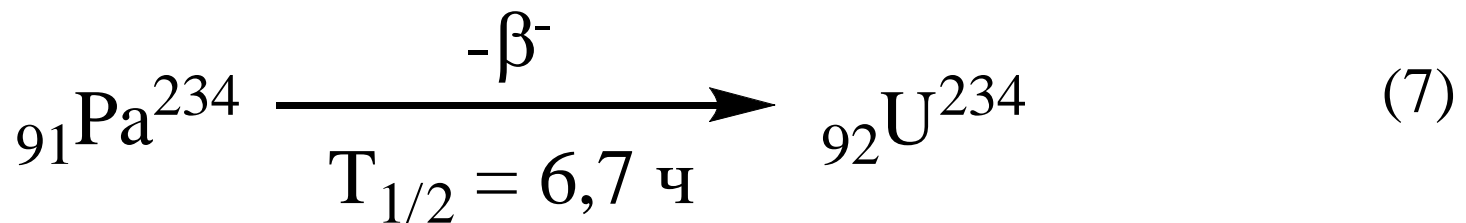
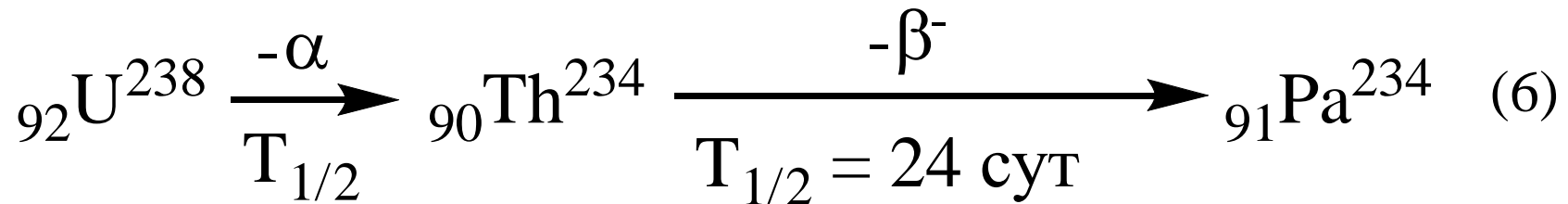


Ядерное топливо, содержащее только природные делящиеся изотопы (^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th), называется первичным.

Ядерное топливо, содержащее делящиеся нуклиды, полученные искусственным путем (^{233}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu), называется вторичным. Изотопы из которых получают вторичное ядерное топливо называются воспроизводящими изотопами.

На современном этапе ядерная энергетика базируется на природном уране, который состоит из трех изотопов:

№	Изотоп U	Содержание в природной смеси, %	Период полураспада (T _{1/2})
1	²³⁸ U	99,2831	4,5×10 ⁹ лет
2	²³⁵ U	0,7115	7,1×10 ⁸ лет
3	²³⁴ U	0,0054	2,5×10 ⁵ лет



Все изотопы урана радиоактивны, испускают α-частицы с энергией 4,5-4,8 МэВ, а также могут спонтанно делиться с испусканием нейтронов (например, ~13 н/с с 1 кг ²³⁸U)

Реакторы (техногенные)

Впервые самоподдерживающаяся ядерная цепная реакция была осуществлена под руководством Энрико Ферми 2 декабря 1942 г. на заброшенном поле для игры в мяч университета в Чикаго. Реактор представлял из себя секции, состоящие из UO_2 природного изотопного состава и графита (замедлителя), которые попеременно укладывались друг на друга. Реакция контролировалась полосками металлического кадмия, которые можно было или опускать вглубь реактора, или приподнимать. Для достижения критических условий потребовалось 6 т металлического урана, 50 т диоксида урана и ~400 т графита.

Реакторы (природные)

В 1972 г. Сотрудниками лаборатории Комиссариата по атомной энергетике Франции в Пьерлатте обнаружили в анализируемых ими образцах урана отклонения в содержании ^{235}U от природного. В ходе расследования было установлено, что пробы с обедненным ураном были получены для руды, добываемой в Окло в Габоне (Африка). Дальнейшие исследования показали, что 1,8 млрд лет назад в рудном теле в Окло создались условия для инициирования ядерной цепной реакции. Полагают, что такие реакторы действовали в пульсирующем режиме в течение приблизительно $(0,2-1) \times 10^6$ лет

Реакторы (техногенные)

F(fuel), E(enrichment), M(moderator), C(coolant)

На медленных нейтронах

На быстрых нейтронах

LMFBR (реактор на быстрых нейтронах с жидкометаллическим охлаждением)

F — $^{239}\text{PuO}_2$ в обедненном UO_2

E — нет необходимости

M — нет необходимости

C — жидкий Na

GCFBR (реактор на быстрых нейтронах с газовым охлаждением):

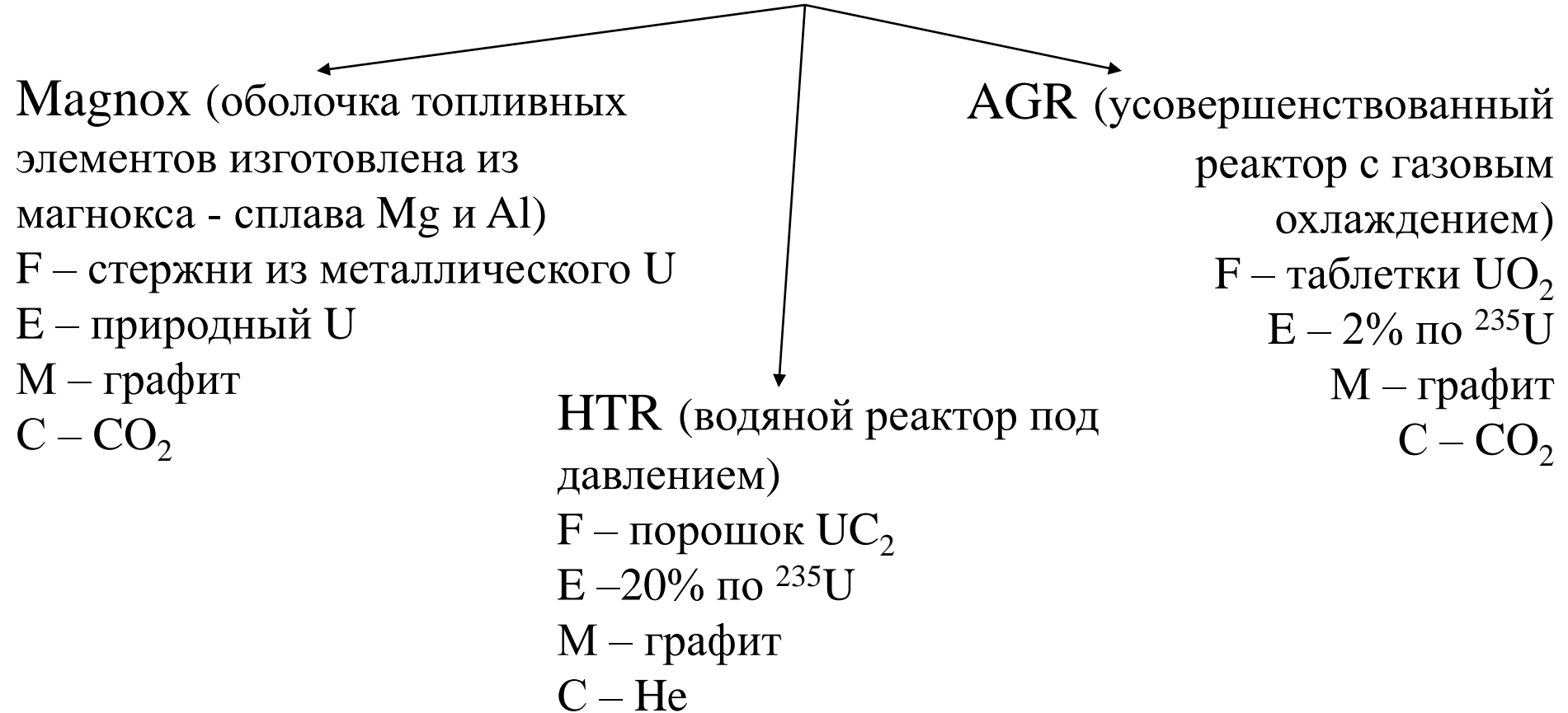
F — $^{239}\text{PuO}_2$ в обедненном UO_2

E — нет необходимости

M — нет необходимости

C — He

Реакторы на медленных нейтронах с газовым охлаждением



Реакторы на медленных нейтронах с водяным охлаждением



PWR (водяной реактор под давлением)

F – таблетки UO_2

E – 3% по ^{235}U

M – H_2O

C – H_2O

BWR (кипящий водяной реактор)

F – таблетки UO_2

E – 2,2% по ^{235}U

M – H_2O

C – H_2O

SGHWR (тяжеловодный реактор с генерацией пара)

F – таблетки UO_2

E – 2,3% по ^{235}U

M – D_2O

C – H_2O

CANDU (канадский дейтериево-урановый реактор)

F – таблетки UO_2

E – природный U

M – D_2O

C – D_2O

Большинство эксплуатируемых в настоящее время реакторов используют в качестве топлива обогащенный уран (2-5 % ^{235}U). В быстрых реакторах для инициирования самоподдерживающейся цепной реакции деления используется уран с обогащением 15-25 %. В исследовательских реакторах используют уран среднего и высокого обогащения (до 90%).

В настоящее время МАГАТЭ рекомендует странам участницам переводить свои исследовательские реакторы на топливо с обогащением не более 20 %. Это связано с мерами предосторожности, так как критическая масса урана обогащенного до 20 % составляет ~830 кг.

Изотоп ^{235}U является единственным природным ядерным материалом, который может делиться нейтронами любых энергий с образованием избыточного количества быстрых нейтронов, благодаря чему может осуществляться цепная реакция деления.

Обогащенный уран – это уран, содержащий изотоп ^{235}U в количестве, превышающем его концентрацию в природном уране. Различают уран:

- 1) Низкообогащенный – $E < 5\%$;
- 2) Среднеобогащенный – E от 5 до 20%;
- 3) Высокообогащенный – E от 20 до 90%;
- 4) Сверхобогащенный (оружейный) – $E > 90\%$.

При производстве обогащенного урана образуется обедненный уран, т.е. уран с содержанием ^{235}U ниже природного уровня.

Виды ядерного топлива

- 1) Чистые металлы, сплавы металлов, интерметаллические соединения;
- 2) Керамика (оксиды, карбиды, нитриды);
- 3) Металлокерамика (керметы - частицы металлического топлива диспергированного в керамической матрице);
- 4) Дисперсное топливо (микрочастицы топлива в защитной оболочке диспергированы в инертной матрице)

Основной конструкционной формой топлива в ядерном реакторе является тепловыделяющий элемент (ТВЭЛ). Он состоит из активной части, в которой содержатся топливные и воспроизводящие ядерные материалы, и наружной герметичной оболочки. Обычно оболочка изготавливается из металла (нержавеющие стали, циркониевые сплавы).

Топливная загрузка реактора размещается в большом количестве ТВЭЛОВ. Типичные размеры наиболее распространенных стержневых ТВЭЛОВ: 5-10 мм в диаметре, 2,5-6 м в длину. Количество ТВЭЛОВ в реакторе измеряется тысячами, например, для реактора ВВЭР-1000 – 48 000 ТВЭЛОВ. ТВЭЛЫ объединяются в тепловыделяющие сборки (ТВС): от нескольких штук до нескольких сотен ТВЭЛОВ в одной ТВС.

Комплект всех ТВС, размещенных в реакторе, образует активную зону, в которой происходит управляемая цепная реакция деления ядер нейтронами, сопровождающаяся преобразованием ядерной энергии в тепловую. Тепловая энергия отводится теплоносителем для дальнейшего преобразования в электрическую.

Особенности «сжигания» ядерного топлива

- 1) Значительно более высокая калорийность ядерного топлива по сравнению с сжиганием органического топлива



($x=2-3$)



«+»:

- сокращение массы и объема топлива, необходимого для для производства энергии;
- сокращение затрат на транспортировку и хранение топлива и как следствие независимость места размещения АЭС от районов добычи и изготовления ядерного топлива

Особенности «сжигания» ядерного топлива

2) Невозможность полного сжигания всех делящихся нуклидов за однократное облучение

За один период работы реактора можно сжечь только ту часть топлива, которая превышает критическую массу и обеспечивает надкритичность (запас реактивности), необходимую для компенсации эффектов, связанных с выгоранием делящихся изотопов и накоплением продуктов деления (ПД).

Выгорание ядерного топлива измеряется либо в количестве накопленных ПД, отнесенного к массе топлива (например 10 % выгорания означает, что 10 % топлива сгорело и превратилось в ПД), либо в количестве выделенной тепловой энергии, отнесенной к массе топлива ($\text{МВт} \times \text{сут/т}$). Установлено, что 1 % выгорания примерно эквивалентен энерговыработке $10 \text{ ГВт} \times \text{сут/т}$. Типичные значения выгорания: для реакторов типа CANDU – $10\text{-}12 \text{ ГВт} \times \text{сут/т}$; для ВВЭР, PWR, BWR – $30\text{-}40 \text{ ГВт} \times \text{сут/т}$; для LMFBFR – до $100 \text{ ГВт} \times \text{сут/т}$.

Особенности «сжигания» ядерного топлива

3) Возможность повторного использования (рецикла) делящихся и воспроизводящих изотопов

После исчерпания запаса реактивности, необходимо заменить отработавшее ядерное топливо (ОЯТ) на свежее топливо. ОЯТ содержит большое количество ценных делящихся (^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu) и воспроизводящих изотопов (^{238}U), а также другие ПД (изотопы более чем 30 элементов). Рецикл делящихся и воспроизводящих изотопов может снизить потребность в природном уране и в потребности его дорогостоящего обогащения.

Воспроизводство делящихся нуклидов происходит при захвате нейтронов изотопами ^{238}U и ^{232}Th (схемы 2-5). Общепринятой характеристикой воспроизводства топлива является отношение скорости накопления вторичного ядерного топлива к скорости сгорания первичного ядерного топлива. Это отношение называют коэффициентом воспроизводства (КВ):

- а) $\text{КВ} < 1$ частичное воспроизводство;
- б) $\text{КВ} = 1$ полное воспроизводство;
- в) $\text{КВ} > 1$ расширенное воспроизводство.

Особенности «сжигания» ядерного топлива

4) «Сжигание» ядерного топлива не требует окислителя

В отличие от использования органического топлива, сжигание ядерного топлива не требует окислителя, а радиоактивные ПД и ОЯТ, длительное время сохраняются в твэлах и ТВС реактора и удаляются в хорошо защищенные хранилища после соответствующей обработки.

Потребление топлива и накопление отходов на угольной ТЭС мощностью 1 ГВт(э) и на АЭС с реактором ВВЭР-1000:

Электростанция	Расход
ТЭС	Уголь – $2,3 \times 10^6$ т/год Кислород – $6,2 \times 10^6$ т/год
АЭС	^{235}U – 1,0 т/год
	Отходы
ТЭС	CO_2 – $8,5 \times 10^6$ т/год Зола – $2,3 \times 10^5$ т/год Отходы сбрасываются в атмосферу
АЭС	Радиоактивные отходы – 1,0 т/год Облученное топливо – 35-40 т/год Отходы находятся в твэлах и ТВС

Особенности «сжигания» ядерного топлива

5) Накопление ПД. Остаточное тепловыделение в остановленном реакторе. Радиоактивность конструкционных материалов и теплоносителя.

При делении топлива (например, схема 1) образуются ПД, представляющие собой изотопы с массовыми числами от 72 до 161. Деление происходит несимметрично, происходит образование изотопов с соотношением масс 2:3.

ПД включают более 200 радиоактивных изотопов 36 элементов и дочерних изотопов их радиоактивного распада (преимущественно β -распад). По длительности периода полураспада различают:

- а) Короткоживущие ПД (КрПД) с $T_{1/2} < 1$ года;
- б) Среднеживущие ПД (СПД) с $1 \text{ год} < T_{1/2} < 87 \text{ лет}$ (^{151}Sm)
- в) Долгоживущие ПД (ДПД) с $T_{1/2} > 65000 \text{ лет}$ (^{79}Se)

После извлечения из реактора ОЯТ выдерживается в течение 3-10 лет. За это время состав продуктов деления существенно меняется в результате распада КрПД.

Особенности «сжигания» ядерного топлива

Кроме ПД, в ОЯТ находятся трансурановые элементы, являющиеся источниками α - и β -излучения. К ним относятся младшие актиниды (МА), такие как ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm и ^{245}Cm . Их химические свойства схожи со свойствами редкоземельных ПД, и при химической переработке ОЯТ и отделении ПД, МА уходят вместе с ними. Темп накопления МА для реакторов, загруженных урановым оксидным топливом и смешанным уран-плутониевым оксидным (МОХ) топливом представлен в таблице.

Изотоп	$T_{1/2}$, год	Накопление МА, кг/ГВт(э)×год	
		UOX	МОХ
^{237}Np	$2,1 \times 10^6$	20,4	15,1
^{241}Am	432	1,3	6,0
^{243}Am	7380	2,5	21,8
^{244}Cm	18,1	0,9	15,6
^{245}Cm	8500	0,1	1,7
Всего:	-	25,2	60,2

Особенности «сжигания» ядерного топлива

Активность ОЯТ в основном обусловлена короткоживущими изотопами, поэтому она быстро падает после извлечения из реактора по закону Вэя-Вигнера:

$$A(t) \sim A(t_0) \times t^{-1/2} \quad (9)$$

t – время после извлечения

Уравнение справедливо для расчета активности топлива в течение 100 дней после извлечения.

Остаточное тепловыделение ОЯТ в активной зоне и в бассейне выдержки обусловлено процессами распада ПД и МА.

Вклад в активность вносит также наведенная радиоактивность стальных внутриреакторных конструкций. Основные радиоактивные изотопы: ^{63}Ni ($T_{1/2} = 100$ лет), ^{63}Co ($T_{1/2} = 5,3$ года), ^{55}Fe ($T_{1/2} = 2,7$ года).

Проблема наведенной радиоактивности металлоконструкций энергетических реакторов станет особенно актуальной по мере вывода из эксплуатации большого количества АЭС, построенных в 1970-ых годах (около 160 энергоблоков)

Таким образом, в процессе изготовления, использования и переработки ядерное топливо проходит ряд последовательных стадий, которые могут быть объединены в понятие ядерного топливного цикла.